

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Process for preparing soft, elastic, open-celled PUR foams

Patent Number: EP0554721
Publication date: 1993-08-11
Inventor(s): MEYER-AHRENS SVEN DR (DE); JACOBS GUNDOLF DR (US); HETTEL HANS DR (DE)
Applicant(s): BAYER AG (DE)
Requested Patent: ☐ EP0554721, B1
Application Number: EP19930100877 19930121
Priority Number(s): DE19924202992 19920203
IPC Classification: C08G18/48; C08G18/66
EC Classification: C08G18/48A3, C08G18/48A6
Equivalents: CA2088414, ☐ DE4202992, DK554721T, ES2108142T, ☐ JP5271379, NO302891B, NO930181
Cited patent(s): EP0116309; EP0433889; DE2211914; GB1480972

Abstract

Elastic, open-celled, flexible PUR foams are produced by reacting a) polyisocyanates with b) a mixture containing 1. from 0.5 to 20% by weight of a polyether containing at least two hydroxyl groups and having an oxyethylene group content of >50% by weight and a mean molecular weight of from 400 to 10,000, 2. from 99.5 to 80% by weight of a product of the addition reaction of alkylene oxide with glycerol, optionally blended with ethylene glycol, having a mean molecular weight of from 400 to 10,000 and containing a maximum of 20% by weight of oxyethylene groups, in the presence of c) water and optionally organic blowing agents, and in the presence of d) catalysts, optionally in the presence of e) compounds containing at least two hydrogen atoms which are reactive towards isocyanates, and having a molecular weight of from 32 to 399, and f) surface-active or flame-inhibiting additives known per se and further auxiliaries known per se, where the reaction is carried out in a characteristic number range of from 95 to 110.

Data supplied from the esp@cenet database - I2

THIS PAGE BLANK (USPTO)



Eur päisches Patentamt
European Patent Office
Office ur péeen des brevets



11 Veröffentlichungsnummer: **0 554 721 A1**

12

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

21 Anmeldenummer: 93100877.5

51 Int. Cl.⁵: **C08G 18/48**, C08G 18/66,
/(C08G18/48,101:00)

22 Anmeldetag: 21.01.93

30 Priorität: 03.02.92 DE 4202992

43 Veröffentlichungstag der Anmeldung:
11.08.93 Patentblatt 93/32

84 Benannte Vertragsstaaten:
AT BE CH DE DK ES FR GB IT LI NL PT SE

71 Anmelder: **BAYER AG**

W-5090 Leverkusen 1 Bayerwerk(DE)

72 Erfinder: **Meyer-Ahrens, Sven, Dr.**
Teltowerstrasse 5
W-5090 Leverkusen 1(DE)
Erfinder: **Jacobs, Gundolf, Dr.**
1301 Folkstone Drive
Pittsburgh, PA 15243(US)
Erfinder: **Hettel, Hans, Dr.**
Jägerstrasse 20
W-5064 Rösrath-Forsbach(DE)

54 Verfahren zur Herstellung von elastischen, offenzelligen PUR-Weichschaumstoffen.

57 Elastische, offenzellige PUR-Weichschaumstoffe werden durch Umsetzung von

- a) Polyisocyanaten mit
 - b) einer Mischung, enthaltend
 1. 0,5 bis 20 Gew.-% eines mindestens zwei Hydroxylgruppen aufweisenden Polyethers mit einem Oxyethylengruppen-Gehalt >50 Gew.-% und einem mittleren Molekulargewicht von 400 bis 10.000 und
 2. 99,5 bis 80 Gew.-% eines Alkylenoxid-Additionsproduktes an Glycerin, gegebenenfalls in Abmischung mit Ethylenglykol vom mittleren Molekulargewicht von 400 bis 10.000, und mit einem Gehalt von maximal 20 Gew.-% Oxyethylengruppen, in Gegenwart von
 - c) Wasser und gegebenenfalls organischen Treibmitteln und in Gegenwart von
 - d) Katalysatoren, gegebenenfalls in Gegenwart von
 - e) Verbindungen mit mindestens zwei gegenüber Isocyanaten reaktionsfähigen Wasserstoffatomen mit einem Molekulargewicht von 32 bis 399 sowie
 - f) an sich bekannten oberflächenaktiven oder flammhemmenden Zusatzstoffen und weiteren an sich bekannten Hilfsmitteln, hergestellt,
- wobei die Umsetzung in einem Kennzahlbereich von 95 bis 110 durchgeführt wird.

EP 0 554 721 A1

PUR-Weichschaumstoffe werden bekanntlich als Polstermaterialien im Möbel- und Fahrzeugsektor vielseitig eingesetzt. Um die für den jeweiligen Anwendungsbereich notwendige Rohdichte/Stauchhärte-Relation einzustellen, fanden physikalische Treibmittel wie z.B. Monofluortrichlormethan (R11) Verwendung, da sie im Gegensatz zu Wasser den Polyharnstoffgehalt des Polymers nicht erhöhen.

5 Viele der derzeit bekannten physikalischen Treibmittel weisen jedoch erhebliche Nachteile wie z.B. Ozonabbau-Potential, Treibhauswirksamkeit, Brennbarkeit oder Toxizität, auf.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es daher, die Stauchhärte von PUR-Weichschaumstoffen (Heißschaumstoffen) ohne Einsatz der bisher verwendeten physikalischen Treibmittel in der gewünschten Weise einzustellen.

10 Bekannt ist, daß die Stauchhärte eines PUR-Weichschaumstoffes durch Absenkung des Isocyanat-Index verringert werden kann.

Um bei Rohdichte 23 kg/m^3 , einem sehr gängigen Schaumstofftyp entsprechend, eine Stauchhärte von 2,0 kPa zu erzielen, ist es z.B. notwendig, den Isocyanat-Index von 107 auf 92 abzusenken. Wie die Beispiele A und C zeigen, führt die Indexabsenkung aber zu einem nicht akzeptablen Verlust der mechanischen Eigenschaften.

15 Eine andere bekannte Möglichkeit zur Stauchhärtereduzierung besteht in der anteiligen Mitverwendung von Polyethern mit einem hohen Gehalt an Oxyethyleneinheiten. Polyethylenglykole besitzen aber häufig hohe Schmelzpunkte und sind daher nur schlecht zu verarbeiten oder führen in den zur Härtereduzierung notwendigen Mengen zu Störungen des Schäumvorgangs (Neigung zur Geschlossenzeelligkeit bei linearen Typen, Schauminstabilitäten bei höherfunktionellen Ethern des genannten Typs).

20 Überraschenderweise wurde nun gefunden, daß sich offenzellige PUR-Blockschaumstoffe mit verringerter Härte und guter Elastizität herstellen lassen, wenn man geringe Mengen Oxyethylengruppen-reicher Polyether (Oxyethylengruppen-Gehalt >50 %, Funktionalität mindestens zwei) mitverwendet und gleichzeitig im Kennzahlbereich (Indexbereich) zwischen 95 und 110 arbeitet.

25 Das Verfahren ermöglicht es so, die Stauchhärte bei exzellentem Wertenniveau, insbesondere bei hoher Schaumstoffelastizität, um mehr als 40 % zu reduzieren.

Überraschend ist im Vergleich zu den Beispielen A und B mit normalem Isocyanat-Index, daß die Elastizität durch die Verwendung des erfindungsgemäßen speziellen Polyethergemischs sogar nach angehoben wird (Beispiele B und E). Als Stand der Technik gilt nämlich, daß hohe Wassermengen und niedrige Indices Schaumstoffe unelastisch, d.h. "müde" machen.

30 Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Herstellung von elastischen, offenzelligen PUR-Weichschaumstoffen durch Umsetzung von

- a) Polyisocyanaten mit
- b) mindestens zwei gegenüber Isocyanaten aktive Wasserstoffatome aufweisenden Polyethern vom Molekulargewicht 400 bis 10.000 in Gegenwart von
- 35 c) Wasser und gegebenenfalls organischen Treibmitteln und in Gegenwart von
- d) Katalysatoren, gegebenenfalls in Gegenwart von
- e) Verbindungen mit mindestens zwei gegenüber Isocyanaten reaktionsfähigen Wasserstoffatomen mit einem Molekulargewicht von 32 bis 399 sowie
- 40 f) an sich bekannten oberflächenaktiven oder flammhemmenden Zusatzstoffen und weiteren an sich bekannten Hilfsmittel,

dadurch gekennzeichnet, daß als Komponente b) eine Mischung enthaltend

- 1. 0,5 bis 20 Gew.-% eines mindestens zwei Hydroxylgruppen aufweisenden Polyethers mit einem Oxyethylengruppen-Gehalt >50 Gew.-% (bezogen auf Gesamtalkylenoxid), einem mittleren Molekulargewicht von 400 bis 10.000, vorzugsweise 5 bis 10 Gew.-% eines Triols vom mittleren Molekulargewicht von 3.000 bis 5.000 und mit einem Gehalt an Oxyethylengruppen größer als 70 Gew.-%, (bezogen auf Gesamtalkylenoxid) und
- 45 2. 99,5 bis 80 Gew.-% eines Alkylenoxid-Additionsproduktes an Glycerin und gegebenenfalls zusätzlich Ethylenglykol vom mittleren Molekulargewicht von 400 bis 10.000, bevorzugt 3.000 bis 5.000, und mit einem Gehalt von maximal 20 Gew.-%, (bezogen auf Gesamtalkylenoxid) Oxyethylengruppen, bevorzugt mit einem Oxyethylengruppen-Gehalt von bis zu 13 Gew.-% verwendet wird,
- 50 wobei die Umsetzung in einem Kennzahlbereich von 95 bis 110, bevorzugt 98 bis 100 durchgeführt wird.

Erfindungsgemäß bevorzugt ist, daß

- anionische, kationische oder nichtionische Emulgatoren, bevorzugt Emulgatoren aus der Klasse der Alkansulfonate, mitverwendet werden,
- 55 - daß Wasser in einer Menge von 2 bis 15 Gew.-%, bezogen auf die Komponente b), als Treibmittel verwendet wird.

Zur Herstellung der erfindungsgemäßen Schaumstoffe werden eingesetzt:

a) Aliphatische, cycloaliphatische, aromatische und heterocyclische Polyisocyanate, wie sie z.B. von W. Siefken in Justus Liebigs Annalen der Chemie, 562, Seiten 75 bis 136, beschrieben werden, beispielsweise solche der Formel

5 Q(NCO)_n

in der n = 2 bis 4, vorzugsweise 2 bis 3, und Q = einen aliphatischen Kohlenwasserstoffrest mit 2 bis 18, vorzugsweise 6 bis 10 C-Atomen, einen cycloaliphatischen Kohlenwasserstoffrest mit 4 bis 15, vorzugsweise 5 bis 10 C-Atomen, einen aromatischen Kohlenwasserstoffrest mit 6 bis 15, vorzugsweise
 10 6 bis 13 C-Atomen oder einen araliphatischen Kohlenwasserstoffrest mit 8 bis 15, vorzugsweise 8 bis 13 C-Atomen bedeuten, z.B. solche Polyisocyanate, wie sie in der DE-OS 28 32 253, Seiten 10 bis 11, beschrieben werden. Besonders bevorzugt werden aromatische Polyisocyanate, besonders die technisch leicht zugänglichen aromatischen Polyisocyanate, z.B. das 2,4- und 2,6-Toluylendiisocyanat, sowie beliebige Gemische dieser Isomeren ("TDI"); Polyphenylpolymethylenpolyisocyanate, wie sie durch
 15 Anilin-Formaldehyd-Kondensation oder anschließende Phosgenierung hergestellt werden ("rohes MDI") und Carbodiimidgruppen, Urethangruppen, Allophanatgruppen, Isocyanuratgruppen, Harnstoffgruppen oder Biuretgruppen aufweisenden Polyisocyanate ("modifizierte Polyisocyanate"), insbesondere solche modifizierten Polyisocyanate, die sich vom 2,4- und/oder 2,6-Toluylendiisocyanat beziehungsweise vom 4,4'- und/oder 2,4'-Diphenylmethandiisocyanat ableiten,

20 b) eine Mischung, enthaltend

1. 0,5 bis 20 Gew.-% eines mindestens zwei Hydroxylgruppen aufweisenden Polyethers mit einem Oxyethylengruppen-Gehalt >50 Gew.-% (bezogen auf Gesamtalkylenoxid), und einem mittleren Molekulargewicht von 400 bis 10.000. Dieses Polyetherpolyol weist überwiegend prim. OH-Gruppen auf. Vorzugsweise werden 5 bis 10 Gew.-% eines Triols mit einem mittleren Molekulargewicht von 3.000
 25 bis 5.000 und einem Gehalt an Oxyethylengruppen größer als 70 Gew.-%, (bezogen auf Gesamtalkylenoxid) verwendet.

2. 99,5 bis 80 Gew.-% eines Alkylenoxid-Additionsproduktes an Glycerin oder einer Mischung aus Glycerin und Ethylenglykol mit einem mittleren Molekulargewicht von 400 bis 10.000, bevorzugt 3.000 bis 5.000, und einem Gehalt von maximal 20 Gew.-% (bezogen auf Gesamtalkylenoxid) Oxyethylengruppen, bevorzugt mit einem Oxyethylengruppen-Gehalt von bis zu 13 Gew.-% (bezogen auf Gesamtalkylenoxid). Dieses Additionsprodukt weist überwiegend sek. OH-Gruppen auf.
 30

c) Wasser und gegebenenfalls organische Treibmittel. Vorzugsweise wird Wasser in einer Menge von 2 bis 15 Gew.-%, bezogen auf Komponente b), eingesetzt.

d) Katalysatoren der an sich bekannten Art in Mengen bis zu 10 Gew.-%, bezogen auf die Mengen an Komponente b).
 35

e) Gegebenenfalls werden Verbindungen mit mindestens zwei gegenüber Isocyanaten reaktionsfähigen Wasserstoffatomen und einem Molekulargewicht von 32 bis 399 mitverwendet. Man versteht hierunter Hydroxylgruppen und/oder Aminogruppen und/oder Thiolgruppen und/oder Carboxylgruppen aufweisende Verbindungen, vorzugsweise Hydroxylgruppen und/oder Aminogruppen aufweisende Verbindungen, die als Kettenverlängerungsmittel oder Vernetzungsmittel dienen. Diese Verbindungen weisen in der Regel 2 bis 8, vorzugsweise 2 bis 4, gegenüber Isocyanaten reaktionsfähige Wasserstoffatome auf. Beispiele hierfür werden in der DE-OS 28 32 253, Seiten 19 bis 20, beschrieben.
 40

Gegebenenfalls werden ferner mitverwendet:

Oberflächenaktive Zusatzstoffe, wie Emulgatoren und Schaumstabilisatoren, ferner Zellregler der an sich bekannten Art wie Paraffine oder Fettalkohole oder Dimethylpolysiloxane sowie Pigmente oder Farbstoffe und Flammschutzmittel der an sich bekannten Art, z.B. Trischlorethylphosphat, Triskresylphosphat, ferner Stabilisatoren gegen Alterungs- und Witterungseinflüsse, Weichmacher und fungistatisch und bakteriostatisch wirkende Substanzen sowie Füllstoffe wie Bariumsulfat, Kieselgur, Ruß oder Schlämme.
 45

Diese gegebenenfalls mitzuverwendenden Hilfs- und Zusatzstoffe werden beispielsweise in der DE-OS 27 32 292, Seiten 21 bis 24, beschrieben.
 50

Weitere Beispiele von gegebenenfalls erfindungsgemäß mitzuverwendenden oberflächenaktiven Zusatzstoffen und Schaumstabilisatoren sowie Zellreglern, Reaktionsverzögerern, Stabilisatoren, flammhemmenden Substanzen, Weichmachern, Farbstoffen und Füllstoffen sowie fungistatisch und bakteriostatisch wirksamen Substanzen sowie Einzelheiten über Verwendungs- und Wirkungsweise dieser Zusatzmittel sind im Kunststoff-Handbuch, Band VII, herausgegeben von Vieweg und Höchtlen, Carl-Hanser-Verlag, München 1966, z.B. auf den Seiten 103 bis 113 beschrieben.
 55

Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens

Die Reaktionskomponenten werden erfindungsgemäß nach dem an sich bekannten Einstufenverfahren, dem Präpolymerverfahren oder dem Semipräpolymerverfahren zur Umsetzung gebracht, wobei man sich oft maschineller Einrichtungen bedient, z.B. solcher, die in der US-Patentschrift 27 64 565 beschrieben werden. Einzelheiten über Verarbeitungseinrichtungen, die auch erfindungsgemäß infrage kommen, werden im Kunststoff-Handbuch, Band VII, herausgegeben von Vieweg und Höchtlen, Carl-Hanser-Verlag, München 1966, z.B. auf den Seiten 121 bis 205, beschrieben.

Die Umsetzung aller Komponenten erfolgt erfindungsgemäß bei einer Kennzahl (Isocyanat-Index) von 95 bis 110, vorzugsweise bei einer Kennzahl von 98 bis 100.

Die Kennzahl, ein bei der Herstellung von Polyurethanschaumstoffen sehr häufig verwendeter Begriff, sagt etwas über den Vernetzungsgrad eines Schaumstoffs aus. Es ist Gepflogenheit, denjenigen Schaumstoff als mit der Kennzahl 100 gefertigt zu betrachten, bei welchem die den stöchiometrischen Verhältnissen entsprechende, beziehungsweise die theoretisch notwendige Menge an Isocyanat benutzt wurde. Mit Hilfe der Kennzahl ist es also möglich, den Grad der Unter- oder Übervernetzung näher zu definieren. Die Kennzahl errechnet sich nach der allgemeinen Formel wie folgt:

$$\text{Kennzahl} = \frac{\text{Isocyanatmenge (praktisch)}}{\text{Isocyanatmenge (theoretisch)}} \times 100$$

Die erfindungsgemäß erhältlichen Polyurethan-Weichformschaumstoffe finden z.B. Anwendung als Liege- und Sitzmöbel, Sitze in Verkehrsmitteln, vorzugsweise im Auto.

Alle nachfolgend angeführten Komponenten wurden intensiv miteinander vermischt und in an sich bekannter Weise zum Aufschäumen gebracht.

Beispiele	A (Vergl.)	B	C (Vergl.)
Polyol A	100	90	100
Polyol B		10	
Wasser	4,5	4,5	4,5
Schaumstabilisator OS 20 (Bayer AG)	1,0	1,5	1,0
Dimethyl-ethanolamin	0,3	0,3	0,3
Zinn(II)-octoat	0,2	0,2	0,35
TDI ^{*)}	54,2	54,1	46,4
Isocyanat-Index	107	107	92
Rohdichte / kgm ⁻³	23	23	23
Zugfestigkeit / kPa	124	102	25
Bruchdehnung / %	214	165	54
Stauchhärte (40%) / kPa	3,5	3,4	2,0
DVR (90%) / %	6,2	4,9	klebt
Kugelrückprallelastizität / %	42	44	39

^{*)} Isomerengemisch aus 2,4- und 2,6-Toluyldiisocyanat im Gew.-Verhältnis 80:20 %

Beispiele	D (Vergleich)	E	F
Polyol A	100	90	90
Polyol B		10	10
Wasser	4,5	4,5	4,5
Schaumstabilisator OS 20	1,0	1,5	1,5
Dimethyl-ethanolamin	0,3	0,3	0,3
Zinn(II)-octoat	0,28	0,24	0,22
TDI ^{a)}	47,9	47,8	49,4
Isocyanat-Index	95	95	98
Rohdichte / kgm ⁻³	23	23	23
Zugfestigkeit / kPa	79	94	118
Bruchdehnung / %	189	249	282
Stauchhärte (40%) / kPa	2,7	2,0	2,6
DVR (90%) / %	5,5	4,3	4,2
Kugelrückprallelastizität / %	40	46	44

Polyol A: PO/EO-Addukt an eine Mischung aus Glycerin und Ethylenglykol mit einem Oxyethylengehalt von ca. 10 Gew.-%, überwiegend sek. OH-Endgruppen und einem mittleren Molekulargewicht von ca. 3.500.

Polyol B: PO/EO-Addukt an Glycerin mit einem Gehalt an Oxyethylengruppen von ca. 72 Gew.-%, überwiegend prim. OH-Gruppen und einem mittleren Molekulargewicht von ca. 4.700.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von elastischen, offenzelligen PUR-Weichschaumstoffen durch Umsetzung von

- Polyisocyanaten mit
- mindestens zwei gegenüber Isocyanaten aktive Wasserstoffatome aufweisenden Polyethern vom Molekulargewicht 400 bis 10.000 in Gegenwart von
- Wasser und gegebenenfalls organischen Treibmitteln und in Gegenwart von
- Katalysatoren, gegebenenfalls in Gegenwart von
- Verbindungen mit mindestens zwei gegenüber Isocyanaten reaktionsfähigen Wasserstoffatomen mit einem Molekulargewicht von 32 bis 399 sowie
- an sich bekannten oberflächenaktiven oder flammhemmenden Zusatzstoffen und weiteren an sich bekannten Hilfsmittel,

- dadurch gekennzeichnet, daß als Komponente b) eine Mischung enthaltend
- 0,5 bis 20 Gew.-% eines mindestens zwei Hydroxylgruppen aufweisenden Polyethers mit einem Oxyethylengruppen-Gehalt >50 Gew.-% (bezogen auf Gesamtalkylenoxid) und mit einem mittleren Molekulargewicht von 400 bis 10.000, und
 - 99,5 bis 80 Gew.-% eines Alkylenoxid-Additionsproduktes an Glycerin und gegebenenfalls zusätzlich Ethylenglykol vom mittleren Molekulargewicht 400 bis 10.000, vorzugsweise 3.500 bis 4.500, und mit einem Gehalt von maximal 20 Gew.-% (bezogen auf Gesamtalkylenoxid) an Oxyethylengruppen
- wobei die Umsetzung in einem Kennzahlbereich von 95 bis 110, bevorzugt 98 bis 100, durchgeführt wird.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß anionische, kationische oder nichtionische Emulgatoren, bevorzugt Emulgatoren aus der Klasse der Alkansulfonate, mitverwendet werden.



Europäisches
Patentamt

EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung

EP 93100877.5

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl.)
Y, X	<u>EP - A - 0 116 309</u> (BASF WYANDOTTE CORPORATION) * Ansprüche *	1	C 08 G 18/48 C 08 G 18/66 // (C 08 G 18/48 C 08 G 101:00
Y	<u>EP - A - 0 433 889</u> (BASF AKTIENGESELLSCHAFT) * Ansprüche; Seite 7, Zeilen 23-35 *	1, 2	
X	<u>DE - A - 2 211 914</u> (PECHINEY UGINE KUHLMANN) * Ansprüche *	1	
X	<u>GB - A - 1 480 972</u> (NAPHTACHIMIE) * Ansprüche *	1	
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt.			RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. Cl.) C 08 G 18/00 C 08 J
Recherchenort WIEN		Abschlußdatum der Recherche 07-05-1993	Prüfer WEIGERSTORFER
<p>KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTEN</p> <p>X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie A : technologischer Hintergrund O : nichtschriftliche Offenbarung P : Zwischenliteratur T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze</p> <p>E : älteres Patentedokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist D : in der Anmeldung angeführtes Dokument L : aus andern Gründen angeführtes Dokument & : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument</p>			